

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-020673  
(43)Date of publication of application : 23.01.1996

---

(51)Int.CI. C08K 9/06  
C08L 63/00  
C08L101/00

---

(21)Application number : 06-175977 (71)Applicant : SHIN ETSU CHEM CO LTD  
(22)Date of filing : 05.07.1994 (72)Inventor : FUTATSUMORI KOJI  
TOMIYOSHI KAZUTOSHI  
SHIOBARA TOSHIO

---

## (54) INORGANIC FILLER FOR RESIN AND EPOXY RESIN COMPOSITION

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To obtain an inorganic filler consisting of a specific composition, having a low viscosity at a room temperature or when melted at a high temperature even in the case where a large amount of the filler is compounded into an epoxy resin, etc., excellent in fluidity and little in aggregate generation when added to a resin.

**CONSTITUTION:** This filler is obtained by compounding (A) 100 pts.wt., of a surface-treated filler obtained by treating 100 pts.wt. of an inorganic filler (e.g. crystalline silica and alumina) having an average particle diameter of 5–40 $\mu\text{m}$  with an alkoxy-containing silane (e.g. 3-glycidoxypropyltrimethoxysilane or phenyltrimethoxysilane) or its partially hydrated substance with (B) 1–40 pts.wt. of an inorganic filler which is not treated with the alkoxy-containing silane or its partially hydrated material and having an average diameter of  $\leq 4\mu\text{m}$ . Further, the amount of the alkoxy-containing silane used in the component A is preferably 0.1–0.6 pts.wt. based on 100 pts.wt. of the inorganic filler. The mixture of the component A with the component B is preferably passed through a 100–200 mesh sieve to remove aggregates.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 22.07.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3033445

[Date of registration] 18.02.2000

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-20673

(43)公開日 平成8年(1996)1月23日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
C 08 K 9/06	KCQ			
C 08 L 63/00	NLD			
101/00				

審査請求 未請求 請求項の数2 FD (全6頁)

(21)出願番号	特願平6-175977	(71)出願人	000002060 信越化学工業株式会社 東京都千代田区大手町二丁目6番1号
(22)出願日	平成6年(1994)7月5日	(72)発明者	ニッ森 浩二 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内
		(72)発明者	富吉 和俊 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社シリコーン電子材料 技術研究所内
		(74)代理人	弁理士 小島 隆司
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】樹脂用無機質充填剤及びエポキシ樹脂組成物

(57)【要約】

【構成】 (A) 平均粒径5~40μmの無機質充填剤100重量部をアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理した表面処理充填剤100重量部と、(B) アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理されていない平均粒径4μm以下の無機質充填剤1~40重量部とを混合する。

【効果】 吸湿性低下などを目的としてエポキシ樹脂などに大量に配合しても、常温乃至高温溶融状態における粘度が低く、流动特性が良好であると共に、樹脂組成物中で凝集物を与えることが少ない。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) 平均粒径 $5\sim 40\mu m$ の無機質充填剤100重量部をアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理した表面処理充填剤100重量部と、(B) アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理されていない平均粒径 $4\mu m$ 以下の無機質充填剤1~40重量部とを混合してなることを特徴とする樹脂用無機質充填剤。

【請求項2】 エポキシ樹脂と硬化剤と無機質充填剤とを含有してなるエポキシ樹脂組成物において、上記無機質充填剤として請求項1記載の樹脂用無機質充填剤を使用したことの特徴とするエポキシ樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、吸湿性低下などを目的としてエポキシ樹脂などに大量に配合しても、常温乃至高温溶融状態における粘度が低く、流動特性が良好であると共に、樹脂組成物中で凝集物を与えることが少ない樹脂用無機質充填剤及び該充填剤を用いたエポキシ樹脂組成物に関する。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 現在、半導体産業の中で樹脂封止型のダイオード、トランジスタ、I C、LSI、超LSIが主流となっており、この封止樹脂としてエポキシ樹脂は一般に他の熱硬化性樹脂に比べて成形性、接着性、電気特性、機械特性、耐湿性などに優れているため、エポキシ樹脂組成物で半導体装置を封止することが多く行われている。

【0003】 最近においては、これらの半導体装置は集積度が益々大きくなり、それに応じてチップ寸法も大きくなりつつある。一方、これに対してパッケージ外観寸法は電子機器の小型化、軽量化の要求に伴い、薄型化が進んでいる。更に、半導体部品を回路基板へ取り付ける方法も、基板上の部品の高密度化や基板の薄型化のため、半導体部品の表面実装化が幅広く行われるようになってきた。

【0004】 しかしながら、半導体装置を表面実装する場合、半導体装置全体を半田槽に浸漬するか又は半田が溶融するゾーンを通過させる方法が一般的であるが、その際の熱衝撃により封止樹脂層にクラックが発生したり、リードフレームやチップと封止樹脂との界面に剥離が生じたりする。このようなクラックや剥離は、表面実装時の熱衝撃以前に半導体装置の封止樹脂層が吸湿していると更に顕著なものとなるが、実際の作業工程においては、封止樹脂層の吸湿は避けられず、このため実装後のエポキシ樹脂で封止した半導体装置の信頼性が大きく損なわれる場合がある。

【0005】 このような状況から、封止樹脂層の吸湿を少なくして表面実装時のクラックや剥離の発生を防止するため、低吸湿性の封止樹脂が要求されてきており、こ

のような低吸湿性の封止樹脂を得る方法の一つに無機質充填剤を多量に配合することが有効であることが知られている。

【0006】 ところが、封止樹脂組成物に無機質充填剤を多量に配合すると、溶融粘度が高くなってしまい、流動特性が悪くなってしまうという問題があるが、上述した半導体装置をトランスファー成形する場合、樹脂組成物の溶融粘度はできる限り低くする必要がある。

【0007】 この場合、溶融粘度を低くするため、粒径の大きい充填剤と粒径の小さい充填剤とを併用する方法が知られており、また樹脂と無機質充填剤との界面を制御するため、無機質充填剤をシランカップリング剤で表面処理する方法が知られているが、これらの方法でもなお常温乃至高温溶融状態における粘度の低下が不十分であると共に、無機質充填剤の凝集物が多量に発生して硬化物の機械的強度が低下するという問題がある。

【0008】 本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、吸湿性を低下させる目的でエポキシ樹脂等に大量に配合した場合でも室温乃至高温溶融状態における粘度が低く、流動特性が良好であり、かつ樹脂に配合した場合、無機質充填剤の凝集物を与えることが少ない樹脂用無機質充填剤及び該充填剤を用いたエポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。

## 【0009】

【課題を解決するための手段及び作用】 本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、平均粒径 $5\sim 40\mu m$ の無機質充填剤100重量部をアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理した表面処理充填剤100重量部と、アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理されていない平均粒径 $4\mu m$ 以下の無機質充填剤1~40重量部とを混合してなる充填剤が有効であることを知見した。

【0010】 即ち、従来より平均粒径の異なる充填剤を併用することは公知であり、またアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で無機質充填剤の表面を処理することも公知であり、本発明者らは、これらを組み合わせて平均粒径の異なる充填剤を用いると共に、それをアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理することを試みたが、流動性は良好であるものの、充填剤の凝集物が多く、そのため硬化物の機械的強度が劣るものであるのに対し、平均粒径の異なる充填剤を併用する場合、粒径の大きい方のみをアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理し、粒径の小さい方をアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理せずにこれらを混合することで、意外にも樹脂に配合した場合に凝集物が少なく、かつ常温乃至高温溶融時における粘度が低く流動性が良好であることを見い出し、本発明をなすに至ったものである。

【0011】 従って、本発明は、(A) 平均粒径 $5\sim 40\mu m$ の無機質充填剤100重量部をアルコキシ基含有

シラン又はその部分加水分解物で処理した表面処理充填剤100重量部と、(B)アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理されていない平均粒径4μm以下の無機質充填剤1～40重量部とを混合してなることを特徴とする樹脂用無機質充填剤、及びエポキシ樹脂と硬化剤と無機質充填剤とを含有してなるエポキシ樹脂組成物において、上記無機質充填剤として上記樹脂用無機質充填剤を使用したことを特徴とするエポキシ樹脂組成物を提供する。

【0012】以下、本発明について更に詳しく説明すると、本発明の樹脂用無機質充填剤は、上述したように(A)アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で処理した平均粒径の大きい無機質充填剤と、(B)アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物で表面処理されていない平均粒径の小さい無機質充填剤とを混合したものである。

【0013】本発明においては、(A)成分の無機質充填剤の平均粒径は5～40μm、好ましくは7～30μmの範囲とする必要がある。平均粒径が5μmより小さいと(B)成分のより小さい平均粒径の無機質充填剤と併用した効果が発現せず、一方40μmより平均粒径が大きいと溶融時の流動性が悪くなる。使用できる無機質充填剤の種類としては、従来公知の無機質充填剤を使用することができ、例えば破碎状や球状の溶融シリカ、結晶性シリカの他、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム等を挙げることができる。また、平均粒径、材質、形状の異なる2種以上の無機質充填剤を併用してもよく、硬化物の低膨張化と成形性とを両立させるためには球状品と破碎品との併用、あるいは球状品のみを用いることが推奨される。

【0014】このような無機質充填剤を処理するアルコキシ基含有シランとしては、従来公知のものが使用可能であり、例えば3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、1,3-ビス(γ-グリシドキシプロピル)-1,1,3,3-テトラメトキシ-1,3-ジシロキサン、1,3-ジメチル-1,1,3,3-テトラメトキシ-1,3-ジシロキサン、フェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン等を挙げることができ、これらの部分加水分解物を使用することもできる。

【0015】アルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物の使用量は、無機質充填剤100部(重量部、以下同様)に対して0.1～1部が好ましく、より好ましくは0.1～0.6部の範囲である。0.1部より使用量が少ないと、樹脂組成物に配合した場合、樹脂と無機質充填剤との界面制御が十分にできない場合が生じ、一方1部より使用量が多いと、凝集物ができやすくなるおそれがある。

【0016】(A)成分の表面処理充填剤を作成する方法としては、特に制限されないが、ヘンシェルミキサー

等の公知の混合機に入れた無機質充填剤にスプレー等の散布手段でアルコキシ基含有シラン又はその部分加水分解物を散布し、その後無機質充填剤を混合して得ることができる。このままで(B)成分の無機質充填剤と混合してもよいが、より凝集物を少なくするために室温で数日間放置したり、あるいは熱処理したりした後、100～200メッシュの篩を通して凝集物を除くことが好ましい。

【0017】一方、(B)成分の平均粒径が4μm以下、好ましくは0.2～3μmの無機質充填剤としては、従来公知の無機質充填剤を使用でき、例えば破碎状や球状の溶融シリカ、結晶性シリカの他、アルミナ、窒化ケイ素、窒化アルミニウム等を挙げができる。また、平均粒径、材質、形状の異なる2種以上の無機質充填剤を併用してもよい。

【0018】この(B)成分の無機質充填剤の使用量は、(A)成分の表面処理無機質充填剤100部に対して1～40部、好ましくは3～30部の範囲とする必要がある。使用量が1部より少ないと、樹脂と混合した場合の常温乃至高温溶融状態における粘度を十分に低くすることができず、一方40部を超えると経済的に不利になったり、凝集が起こりやすくなる。

【0019】(A)成分と(B)成分の充填剤の混合は、従来公知の混合装置を使用することができる。具体的にはヘンシェルミキサー、バーチカルミキサー、ボールミル、コンクリートミキサー等の混合機を挙げることができる。なお、混合後100～200メッシュの篩で凝集物を除いておくことが好ましい。

【0020】本発明の樹脂用無機質充填剤は、樹脂に多量配合した場合、常温乃至高温溶融時における粘度が低く、良好な流動性を保つと共に、樹脂に配合した場合の凝集物が可及的に少ないので、樹脂の機械的強度を低下させるおそれが可及的に少ない。このため、硬化性エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、熱可塑性樹脂などの各種の樹脂の充填剤として有用であり、とりわけ半導体封止用エポキシ樹脂組成物の充填剤として極めて有用である。

【0021】以下、かかる樹脂用無機質充填剤を配合した本発明のエポキシ樹脂組成物について説明すると、本発明のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤及び上記樹脂用無機質充填剤を主成分として配合したものである。

【0022】ここで、エポキシ樹脂としては、一分子中にエポキシ基を少なくとも2個有するエポキシ樹脂であればいずれのものも使用可能であり、具体的にはビスフェノールA型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、トリフェノールアルカン型エポキシ樹脂及びその重合物、ビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンフェノールノボラック樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ナフタレン環含有エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、脂環式エポキ

シ樹脂、複素環型エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂等を用いることができる。これらのエポキシ樹脂の中ではナフタレン環含有エポキシ樹脂やビフェニル型エポキシ樹脂が低吸湿、高接着性を得る点で好ましい。なお、これらのエポキシ樹脂は、その使用にあたっては必ずしも1種類に限定されるものではなく、2種類又はそれ以上を混合して使用してもよい。

【0023】また、硬化剤は特に制限されるものではなく、使用するエポキシ樹脂に応じて適宜選定することができ、例えばアミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のフェノールノボラック型硬化剤等が挙げられるが、中でもフェノールノボラック型硬化剤が好ましい。

【0024】硬化剤の配合量は、エポキシ樹脂を硬化させ得る量であり、通常使用される量と/orすることができ、フェノールノボラック型硬化剤を用いた場合、エポキシ樹脂中のエポキシ基と硬化剤中のOH基との比がモル比で1:0.5~1:1.5となるように配合することができる。

【0025】なお、本発明では、エポキシ樹脂と硬化剤との反応を促進させる目的で各種硬化促進剤、例えばイミダゾール類、三級アミン類、ホスフィン系化合物、シクロアミジン化合物などを配合することができる。硬化促進剤の配合量は、特に制限はないが、通常全系に対して0.05~1重量%程度とすることができる。

【0026】また更に、本発明では硬化物の応力を低下させる目的で組成物中にシリコーン系ポリマーを配合してもよい。シリコーン系ポリマーを配合すると、硬化物の熱衝撃テストにおけるパッケージクラックの発生を著しく少なくすることが可能である。このシリコーン系ポリマーとしては、例えばエポキシ基、アミノ基、カルボキシル基、水酸基、ヒドロシリル基、ビニル基等を有するシリコーンオイル、シリコーンレジン、シリコーンゴム等やこれらシリコーンポリマーと有機重合体、例えば置換又は非置換のフェノールノボラック樹脂等の重合体を挙げることができる。

【0027】なお、シリコーン系ポリマーの添加量は特に限定されないが、通常エポキシ樹脂と硬化剤との合計量100部に対し、1~50部とすることが好ましい。

【0028】更に、硬化物に可撓性や強靭性を付与する目的で、各種有機合成ゴム、メタクリル酸メチルースチレン-ブタジエン共重合体、ステレン-エチレン-ブテン-スチレン共重合体等の熱可塑性樹脂を添加することができ、これによって硬化物に低応力を付与することができる。

【0029】本発明のエポキシ樹脂組成物には、上述した樹脂用無機質充填剤を配合するものであり、その配合量はエポキシ樹脂組成物全体に対し70~94重量%、特に75~92重量%の範囲とすることが好ましい。配合量が70重量%未満では、得られた硬化物の膨張係数

が大きくなってしまうため応力特性が悪くなってしまう場合があり、一方94重量%を超えると、成形時の溶融粘度が高くなりすぎてボイド、未充填などが発生するおそれがある。

【0030】本発明のエポキシ樹脂組成物には、更に必要により各種の添加剤を配合することができ、例えばカルナバワックス等のワックス類、ステアリン酸などの脂肪酸やその金属塩などの離型剤（中でも接着性、離型性の面からカルナバワックスが好適に用いられる）、有機ゴム系の可撓性付与剤、カーボンブラック、コバルトブルー、ベンガラ等の顔料、酸化アンチモン、ハロゲン化合物等の難燃化剤、マーグリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤、老化防止剤、その他の添加剤の1種又は2種以上を配合することができる。

【0031】本発明のエポキシ樹脂組成物は、その製造に際し、上述した成分の所定量を均一に攪拌、混合し予め70~95℃に加熱してあるニーダー、ロール、エクストルーダー等で混練、冷却し、粉碎するなどの方法で得ることができると、特にミキシングロール、押出機を用いた溶融混合法が好適に採用される。ここで、各成分の配合順序に特に制限はない。

【0032】かくして得られる本発明のエポキシ樹脂組成物は、DIP型、フラットパック型、PLCC型、SO型などの半導体パッケージに有効であり、この場合従来より採用されている成形法、例えばトランスファー成形、インジェクション成形、注型法等により行うことができる。なお、本発明のエポキシ樹脂組成物の成形温度は150~180℃、ポストキュアは150~185℃で2~6時間行うことが好ましい。

### 【0033】

【発明の効果】本発明の樹脂用無機質充填剤は、樹脂に大量に配合した場合でも室温乃至高温溶融状態における粘度が低く、流動特性が良好であり、かつ無機質充填剤の凝集物の発生が可及的に少ない樹脂組成物を与えることができるものである。

【0034】また、本発明のエポキシ樹脂組成物は、無機質充填剤を大量に配合し、吸湿性を可及的に低下させることができると共に、室温乃至高温溶融状態における粘度が低く、流動特性が良好であり、かつ組成物中の無機質充填剤の凝集物が可及的に少なく、このため半導体封止用として好適に使用できるものである。

### 【0035】

【実施例】以下、実施例と比較例を示して本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。なお、以下の例において部はいずれも重量部を示す。

【0036】【実施例1~3、比較例1~3】表1に示す各種無機質充填剤及びマーグリシドキシプロピルトリアルコキシシランを表1に示す量でヘンシェルミキサー

を用いて混合して無機質充填剤混合物を調製した。

【0037】なお、表中の処理方法及びフィラー凝集物の測定方法を次に示す。

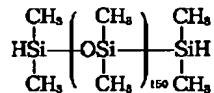
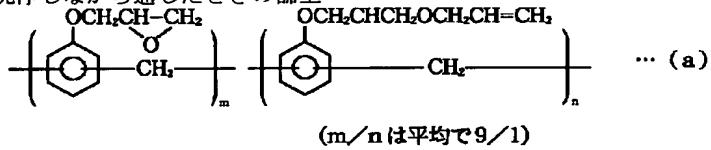
<処理方法>

(A) : 表1中Aで示した充填剤のみを5分間混合した後、スプレーにて $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリアルコキシシランを用いてシランカップリング処理し、その後10分間混合し、室温で1日放置後に100メッシュ篩處理を行った。その後、表1の比率でBで示した充填剤を加えて20分間混合した後に100メッシュ篩で篩分けを行った。

(A+B) : 全ての充填剤を5分間混合した後、スプレーにてシランカップリング処理し、その後10分間混合し、室温で1日放置後に100メッシュ篩で篩分け処理を行った。

<フィラー凝集物測定方法>得られた無機質充填剤混合物100gをアセトン300gに溶解したものを200

メッシュ篩にアセトンで洗浄しながら通したときの篩上



… (b)

【0040】得られた組成物について、下記に示す

(イ)～(ニ)の諸試験を行った。結果を表1に併記する。

(イ) 組成物中の凝集物

組成物の粉体100gをアセトン300gに溶解したものを200メッシュ篩にアセトンで洗浄しながら通したときの篩上の重量を計り、凝集物とした。

(ロ) 溶融粘度

島津製作所製高化式フローテスターを用いて175°C、10kg荷重における粘度を測定した。

の重量を計り、この重量を全体の重量に対する%で表した。

【0038】次に、エポキシ当量198、軟化点60°Cのエポキシ化クレゾールノボラック樹脂51部、エポキシ当量280の臭素化エポキシ化フェノールノボラック樹脂6部、フェノール当量110、軟化点90°Cのフェノールノボラック樹脂33部、下記式(a)で示される化合物60部と下記式(b)で示される化合物40部との反応生成物10部、トリフェニルホスフィン0.65部、三酸化アンチモン10部、カルナバワックス1.2部、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン1.0部、カーボン1部及び上記方法で得られた無機質充填剤混合物400部を配合し、80°Cのミキシングロールで5分間溶融混合した後、シート状にして取り出し、これを冷却粉碎して組成物を得た。

【0039】

【化1】

(ハ) スパイラルフロー

EMM I 規格に準じた金型を使用して175°C、70kgf/cm<sup>2</sup>の条件で測定した。

(ニ) 曲げ強度

JIS-K6911に準じて、175°C、70kgf/cm<sup>2</sup>、成形時間2分の条件で10×4×100mmの抗折棒を成形し、室温で測定した。

【0041】

【表1】

		実施例				比較例		
		1	2	3	4	1	2	3
A	30 μm 球状溶融シリカ	0	0	70	0	0	0	0
	15 μm 球状溶融シリカ	90	80	0	0	90	0	100
	10 μm 破碎溶融シリカ	0	0	20	0	0	100	0
	10 μm 球状アルミナ	0	0	0	86	0	0	0
B	3 μm 球状溶融シリカ	0	10	0	0	0	0	0
	1.0 μm 破碎溶融シリカ	0	0	0	7	0	0	0
	0.4 μm 球状溶融シリカ	10	10	10	7	10	0	0
	アーチグリシドキシプロピルトリアルコキシシラン	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
処理方法		A	A	A	A	A+B	A	A
フィラー凝集物 (%)		0.05	0.14	0.08	0.08	0.82	0.07	0.04
組成物中の凝集物 (%)		0.04	0.10	0.04	0.05	0.37	0.05	0.03
溶融粘度 (poise)		210	170	240	150	250	1040	480
スペイラルフロー (cm)		90	104	82	109	82	30	65
曲げ強度 (kg/mm²)		14.2	14.0	14.7	13.6	12.8	13.5	13.2

【0042】表1から、同じ2種のシリカを用いた実施例1と比較例1とを比較してみると、2種のシリカの両方をアルコキシ基含有シランで処理した場合（比較例1）は、凝集物が多く、その結果曲げ強度が低くなるのに対し、2種のシリカのうち粒径の大きい方のみをアル

コキシ基含有シランで処理した場合（実施例1）は、凝集物が少なく、溶融粘度が低く、曲げ強度も高いことが認められる。また、粒径の小さなシリカを配合しないと（比較例2、3）、溶融粘度が非常に高く、流動性が悪い（スペイラルフローが低い）ことが認められる。

フロントページの続き

(72)発明者 塩原 利夫

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコーン電子材料  
技術研究所内